

**INTERMEDIATE FILM FOR LAMINATED GLASS, LAMINATED GLASS
AND MANUFACTURING METHOD OF LAMINATED GLASS**

Patent Number: JP2003146710
Publication date: 2003-05-21
Inventor(s): MATSUDO MAKI
Applicant(s): SEKISUI CHEM CO LTD
Requested Patent: ☐ JP2003146710
Application Number: JP20010347704 20011113
Priority Number(s):
IPC Classification: C03C27/12; B60J1/00; E06B3/66
EC Classification:
Equivalents:

Abstract

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an intermediate film by which a lamination process is easy and excellent laminated glass can be obtained and to provide laminated glass using the intermediate film and a manufacturing method of the laminated glass.

SOLUTION: The intermediate film for the laminated glass, the laminated glass and the manufacturing method of the laminated glass are characterized in that at least one layer among layers having viscoelasticity characteristics of (a) and (b) described below exists. (a) Storage elastic modulus (G'_{80}) at measuring temperature of 80 deg.C and frequency of 10 rad/s is 1.0×10^5 to 3.0×10^5 Pa. (b) Storage elastic modulus (G'_{120}) at measuring temperature of 120 deg.C and frequency of 10 rad/s is 0.5×10^5 to 2.0×10^5 Pa.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-146710

(P2003-146710A)

(43) 公開日 平成15年5月21日 (2003.5.21)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-ミ-ト* (参考)
C 0 3 C 27/12		C 0 3 C 27/12	D 2 E 0 1 6
B 6 0 J 1/00		B 6 0 J 1/00	H 4 G 0 6 1
E 0 6 B 3/66		E 0 6 B 3/66	

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号	特願2001-347704(P2001-347704)	(71) 出願人	000002174 積水化学工業株式会社 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号
(22) 出願日	平成13年11月13日 (2001.11.13)	(72) 発明者	松堂・真樹 滋賀県甲賀郡水口町泉1259 積水化学工業株式会社内
		Fターム(参考)	2E016 BA03 BA08 CA01 CB01 CB02 CC02 CC03 CC04 EA05 4G061 AA02 AA03 AA04 BA02 CA02 CB03 CB19 CD02 CD18 DA23 DA28 DA29 DA30 DA46 DA61 DA67 DA68

(54) 【発明の名称】 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス並びに合わせガラスの製造方法

(57) 【要約】

【課題】 積層工程が容易で且つ良好な合わせガラスが得られる中間膜及び該中間膜を用いた合わせガラス並びに該合わせガラスの製造方法の提供。

【解決手段】 下記 (a) 及び (b) の粘弾性特性を有する層が少なくとも1層存在することを特徴とする合わせガラス用中間膜及び合わせガラス並びに合わせガラスの製造方法。

(a) 測定温度80℃、周波数10rad/sでの貯蔵弾性率 (G'_{80}) が $1.0 \times 10^5 \sim 3.0 \times 10^5$ Pa

(b) 測定温度120℃、周波数10rad/sでの貯蔵弾性率 (G'_{120}) が $0.5 \times 10^5 \sim 2.0 \times 10^5$ Pa

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記(a)及び(b)の粘弾性特性を有する層が少なくとも1層存在することを特徴とする合わせガラス用中間膜。

(a) 測定温度80℃、周波数10rad/sでの貯蔵弾性率(G'_{80})が $1.0 \times 10^4 \sim 3.0 \times 10^4$ Pa

(b) 測定温度120℃、周波数10rad/sでの貯蔵弾性率(G'_{120})が $0.5 \times 10^4 \sim 2.0 \times 10^4$ Pa

【請求項2】 請求項1記載の合わせガラス用中間膜が用いられてなることを特徴とする合わせガラス。

【請求項3】 A) 合わせガラス用中間膜を少なくとも1対のガラスに挟んでガラス-樹脂積層体を形成し、B) 前記積層体をエンベロープ内に入れ、該エンベロープの雰囲気減圧または脱気し、C) 前記積層体を一定温度で一定時間加熱し、D) 前記エンベロープ内を加熱した温度を保持したままリークし、E) 前記積層体を一定温度で一定時間保持した後冷却を行うことを特徴とする合わせガラスの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、合わせガラス用中間膜(中間膜)及び合わせガラス並びに合わせガラスの製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】ガラス板の間に可塑性ポリビニルブチラル樹脂などの熱可塑性樹脂シートからなる中間膜を挟み、互いに接着させて得られる合わせガラスは、ガラスに物体が衝突したときなどのガラスの飛散、及びガラスによる人体、器具などへの障害を防止するため、あるいは防犯用として自動車、航空機、建築物などの窓ガラスとして広く使用されている。上記合わせガラス用中間膜には、優れた透明性、接着性、耐貫通性、耐候性などの合わせガラスとして必要な諸性能を発現しえることが要求されるので、熱可塑性樹脂の中でもこれらの諸性能のバランスに優れたポリビニルブチラル樹脂フィルムが好適に用いられている。

【0003】従来、合わせガラスは、通常、少なくとも2枚のガラス板間に中間膜を挟み(ガラス-樹脂積層体)、これをニップロール(押圧ロール)に通して抜くか(抜き脱気法)、或いはゴムバックに入れて減圧吸引し、ガラス板と中間膜との間に残留する空気を脱気しながら予備圧着し、次いで、オートクレーブ内で加熱加圧して本圧着を行うことにより製造されるが、積層工程において中間膜とガラスとの間に気泡が残存すると透明性が損なわれるために中間膜及び製造方法の両面から種々の検討がなされている。

【0004】中間膜に関しては、例えば、特公平1-32776号公報には、合わせガラス製造時の予備圧着工程において合わせガラスの中央部近傍に存在する空気を

も脱気させるために、中間膜の両面に微細な凹凸からなる多数のエンボスが形成されている中間膜が開示されている。

【0005】これに対して、従来の製造方法では本圧着をオートクレーブ内で行う必要があり、オートクレーブを設置するために多額の設備投資をする必要があると共に、オートクレーブによる本圧着はバッチ工程になるため、合わせガラスの生産効率が悪いという問題がある。これに対して、オートクレーブを使用しない方法(非オートクレーブ法)が提案されている。非オートクレーブ法の具体的な手段としては、例えば二枚の透明な無機ガラス板の間に、中間膜を挟み、このガラス-樹脂積層体を、ゴムバックのような真空バックの中に入れ、このゴムバックを排気系に接続して、ゴムバック内の圧力が約36~1kPaとなるように吸引減圧しながら温度を上げ、温度約120℃以上で脱気、仮接着(予備圧着)及び本接着(本圧着)を一貫して連続的に行うことにより合わせガラスを得る方法(真空プレス法)であり、例えば、特開平8-104551号公報には、真空プレス時の真空プレス条件と湿度を細かく設定して、オートクレーブの使用をなくする方法が開示されている。この方法では、予備圧着工程が煩雑であったり、合わせ加工の際に調湿条件を非常に厳密に管理しないとベーク発泡が起こるという問題点があった。また、予備圧着工程で発生したガラス周辺の歪が残存することにより、合わせガラスに光学歪が発生したり、樹脂膜の流動温度に於けるプレス圧の不足による気泡やエンボス形状の残留、昇温と同時に真空レベルを下げているため気泡が消滅せず残留してしまうという問題点があった。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明は上記課題に鑑みてなされたものであり、積層工程が容易で且つ良好な合わせガラスが得られる中間膜及び該中間膜を用いた合わせガラス並びに該合わせガラスの製造方法を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らが鋭意研究した結果、真空プレス法にて合わせガラスを作製する時に使用される中間膜の貯蔵弾性率(G')と脱気性に相関があることを見出して本発明に至った。即ち、真空合わせ時の温度における貯蔵弾性率(G')を特定の範囲に制御した中間膜を用い、ガラス-中間膜を積層し、積層体をゴムバックの中に入れ、ゴムバック内を減圧し、次に減圧したゴムバックを一定時間加熱した後、ゴムバックを加熱した状態で減圧度を調整し、更に一定時間加熱時の温度を保持するアニーリング工程を実施した後、ゴムバックを冷却する方式を行うことにより残留気泡やエンボス形状の残らない外観良好な合わせガラスが製造できることを見いだした。この際に必要な中間膜の貯蔵弾性率(G')は、10(rad/s)で測定した、8

0℃の貯蔵弾性率 ($G_{0.0}$) が $1.0 \times 10^5 \sim 3.0 \times 10^5$ Pa であり、120℃の貯蔵弾性率 ($G_{1.0}$) が $0.5 \times 10^5 \sim 2.0 \times 10^5$ Pa である。

【0008】真空プレス法では、通常、真空バッグなどを用いて合わせガラスを減圧プレスする。このときの減圧度が大きいほど大気圧との差が大きくなり外観の良好な合わせガラスが得られやすいが、減圧度が大きすぎると、昇温時に膜中の水分等の揮発成分が発泡を起こし、合わせガラスの外観に著しく悪影響を与える。80℃というのは、特殊な高真空装置を用いなくても通常の減圧装置で容易に達成できる減圧度 (11.3 kPa) で、発泡を起こすことなく合わせガラスを製造できる温度である。

【0009】また、合わせガラスに残留したエンボス形状などを消滅させ、外観の良好な合わせガラスを製造するための工程においては、中間膜が十分に柔らかいことが必要である。しかし、中間膜を柔らかくするために高温にしすぎると、中間膜中に含有されている可塑剤などの揮発成分が揮発して発泡を起こし、合わせガラスの外観に著しい悪影響を与える。120℃というのは可塑剤などが揮発することなく、合わせガラスを製造できる温度である。

【0010】従って、80、120℃では通常、中間膜は流動状態になっているが、80℃までは高真空によりプレスされている状態であり、120℃では減圧を解除してほぼ常圧のような状態となっているので、貯蔵弾性率 ($G_{0.0}$) は $1.0 \times 10^5 \sim 3.0 \times 10^5$ Pa であり、貯蔵弾性率 ($G_{1.0}$) は $0.5 \times 10^5 \sim 2.0 \times 10^5$ Pa である必要がある。貯蔵弾性率 ($G_{0.0}$) が 1.0×10^5 Pa 未満、貯蔵弾性率 ($G_{1.0}$) が 0.5×10^5 Pa 未満では、中間膜が柔らかすぎて合わせガラス作製時に合わせガラスの隙間からはみ出したりして、合わせガラスの外観を著しく損ねる。また、貯蔵弾性率 ($G_{0.0}$) が 3.0×10^5 Pa を超えたり、貯蔵弾性率 ($G_{1.0}$) が 2.0×10^5 Pa を超えると中間膜が硬く、残留しているエンボス、気泡などを消滅させるのに非常に長時間を要したり消滅せずに残留したりする。貯蔵弾性率 ($G_{0.0}$) の好ましい範囲は、 $2.0 \times 10^5 \sim 3.0 \times 10^5$ Pa であり、貯蔵弾性率 ($G_{1.0}$) の好ましい範囲は $1.0 \times 10^5 \sim 1.7 \times 10^5$ Pa である。

【0011】中間膜の膜厚は、合わせガラスとして必要な耐貫通性などを考慮して適宜設定されれば良く、得に限定されないが、従来の中間膜と同様に、0.2～2 mm 程度であることが好ましい。また、中間膜は、その両面に微細な凹凸からなる多数のエンボスが形成されていることが好ましい。

【0012】本発明の中間膜には熱可塑性樹脂シートが用いられる。熱可塑性樹脂シートとしては、例えば、可塑化ポリビニルアセタール系樹脂シート、ポリウレタン系樹脂シート、エチレン-酢酸ビニル系樹脂シート、エ

チレン-エチルアクリレート系樹脂シート、可塑化塩化ビニル系樹脂シートなどの従来から中間膜として用いられているものが挙げられる。これらの熱可塑性樹脂シートは、優れた透明性、接着性、耐貫通性、耐候性などの合わせガラスとして必要な諸性能を発現しえるので好適に用いられるが、中でも可塑化ポリビニルブチラール樹脂シートに代表される可塑化ポリビニルアセタール系樹脂シートが、これらの諸性能のバランスに優れるので特に好適に用いられる。

10 【0013】上記可塑化ポリビニルアセタール系樹脂シートは、ポリビニルブチラール樹脂に代表されるポリビニルアセタール樹脂に、例えば、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルブチレート (3GH)、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキサノエート (3GO)、トリエチレングリコール-ジ-2-ヘプタノエート (3G7) 等の可塑剤を添加してなる可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物を常法により製膜して得られる。

20 【0014】尚、本発明で用いられるガラス板としては、無機ガラス板のみならず、ポリカーボネート板、ポリメチルメタクリレート板等の有機ガラス板を使用しても良いし、無機ガラス板と有機ガラス板とを併用しても良い。また、合わせガラスの構成は、ガラス板/中間膜/ガラス板からなる通常の3層構成のみならず、ガラス板/中間膜/ガラス板/中間膜/ガラス板からなるような多層構成であっても良い。

30 【0015】本発明における合わせガラスの作製方法は、まず、A) 貯蔵弾性率 (G') を特定の範囲に制御した中間膜をガラスなどに挟み込み、B) ガラス-中間膜積層体をゴムバッグの中へ入れ、ゴムバッグ内を減圧する。次に、C) 減圧したゴムバッグを一定時間加熱することにより中間膜とガラスとを積層する。次に、D) 加熱下でゴムバッグ内の圧力を調整し、更に、E) 積層体を一定温度で一定時間保持した後冷却を行う方法である。上記方法において、工程B) でガラスと中間膜との間の空気が除去され、工程C) でガラスと中間膜とが積層される。この時点においては、合わせガラスには、完全に消滅していないエンボス形状が残ったり極わずかに空気がガラスと中間膜との界面に残ったりしている。

40 50 次に、工程D) において、加熱下でゴムバッグ内の圧力を調整し、工程E) を行うことにより、中間膜とガラスとの界面に大気圧がかかることになり、残存していたエンボス形状や空気が完全に消滅し良好な合わせガラスが得られる。

【0016】上記工程B) 及び、工程D) E) において、中間膜の貯蔵弾性率 (G') が小さいと中間膜が柔らかく積層、エンボス形状や気泡の消滅には効果的であるが、小さすぎるとガラスからはみ出して外観を著しく損ねる。又、中間膜の貯蔵弾性率 (G') が大きすぎると中間膜が固すぎると、中間膜の流動性が低下して、残留

しているエンボス、気泡等を消滅させることができず良好な合わせガラスが得られない。上記積層時の温度は、低すぎると中間膜の流動性が低下し、温度が高すぎると、可塑剤などの揮発成分が発泡するので、温度は80℃～140℃が好ましい。また、保持時間が長時間化しても前述の揮発性発泡が生じるので、保持時間は短いほうが良く、大体30秒～30分が好ましい。本発明の貯蔵弾性率(G')が特定の範囲に制御された中間膜は上記の合わせガラスの製造方法以外に、他の製造方法に用いられても良い。

【0017】(作用)本発明では、貯蔵弾性率 G' を特定の範囲に制御した中間膜を用い、プレス前に雰囲気を十分に減圧することにより、潜在的にガラス-中間膜エンボス凹部の空隙(以下、空隙)に存在する空気を充分脱気し、その後、ガラス-中間膜積層体をプレスし、加熱する事で、中間膜を軟化し、また、プレス圧により、空隙に残存した空気の膜中への拡散を促進し、それでも残存している内部が減圧された空隙を完全に消失するために、リーク時に加熱を維持することにより、空隙が気泡として残存することなく、外観が良好な合わせガラスを得ることが出来る。

【0018】従来の貯蔵弾性率を特定の範囲に制御していない中間膜では、中間膜の流動性が良すぎて合わせガラスからはみ出して合わせガラスの外観を損ねたり、逆に中間膜が硬すぎて流動性を確保できず、エンボス、気泡が残留するという欠点があったが、本発明の中間膜、合わせガラス製造方法で、合わせガラスを作製すると、オートクレーブを必要とすることなく、減圧もしくは真空脱気法のみで合わせ加工を行うことが可能となる。

【0019】

【実施例】本発明をさらに詳しく説明するため以下に実施例を挙げるが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

実施例1

(中間膜の作製)表1に示した組成に基づいて、ポリビニルブチラル樹脂と可塑剤とを混合して樹脂組成物を作製し、この樹脂組成物を押し出し機により熔融混練し、押し出し金型よりシート状に押し出して、厚さ0.76mmのポリビニルブチラル樹脂シート(PVBシート)を得た。次に一対のエンボスロールを用いて、このPVBシートの両面に微細な山形の凹凸からなる多数のエンボスを付与し、両面にエンボス模様が形成された

中間膜を製造した。得られた中間膜を温度20℃～25℃、湿度25～30%RHの雰囲気下に2時間放置して調湿した。得られた中間膜について周波数10rad/sで貯蔵弾性率($G_{0.0}'$)、貯蔵弾性率($G_{1.0}'$)を測定した。結果を表1に示した。

(合わせガラスの作製)次いで、2枚の透明な無機平板ガラスの間に上記で得られた中間膜を挟み、合わせガラス積層体とし、積層体をゴムバックにいれ、ゴムバック内の圧力を11.3kPa迄減圧し、減圧下で80℃まで昇温した。温度が80℃に到達すると同時に圧力を94.5kPa迄戻し、圧力を94.5kPaに保持したまま120℃まで加熱した。温度が120℃に到達した時点で常圧にもどし、その後冷却を行い合わせガラスを作製した。この方法で10枚の合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスについて目視により外観を観察し、良品の比率を表1に示した。

【0020】実施例2～4

表1に示した組成に基づいて、実施例1と同様に行い、結果を表1に示した。

【0021】比較例1

表1に示した組成に基づいて、実施例1と同様に行った。合わせガラス10枚中6枚にはエンボス空隙由来の気泡の残存が見られ、透明な合わせガラスを得ることはできなかった。結果を表1に示した。

【0022】比較例2

表1に示した組成に基づいて、実施例1と同様に行った。合わせガラス10枚中5枚にはエンボス空隙由来の気泡の残存が見られ、透明な合わせガラスを得ることはできなかった。結果を表1に示した。

30 【0023】比較例3

表1に示した組成に基づいて、実施例1と同様に行った。合わせガラス10枚中8枚にはエンボス空隙由来の気泡の残存が見られ、透明な合わせガラスを得ることはできなかった。結果を表1に示した。

【0024】比較例4

表1に示した組成に基づいて、実施例1と同様に行った。合わせガラス10枚中10枚にはエンボス空隙由来の気泡の残存が見られ、透明な合わせガラスを得ることはできなかった。結果を表1に示した。

40 【0025】

【表1】

組成	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
ブチラール化度 (mol%)	71	68	65	65	68	65	65	65
アセチル基量 (mol%)	1	1	14	12	1	14	1	1
量	100	100	100	100	100	100	100	100
可塑剤 (3GO)	41	45	38	38	30	30	38	30
貯蔵弾性率 (G_{100}) ($\times 10^{-4}$ Pa)	2.45	2.95	2.89	2.98	3.84	3.41	4.11	4.65
貯蔵弾性率 (G_{100}) ($\times 10^{-4}$ Pa)	1.14	1.23	1.37	1.41	1.89	1.85	1.99	2.49
外観良好比率 (%)	100	100	100	100	60	50	20	0
結果								

【0026】

【発明の効果】以上に述べたように、本発明による貯蔵弾性率 (G') を特定の範囲に制御した中間膜を用いると、多額の設備投資を要するオートクレーブを必要とす

ることなく、減圧、もしくは真空脱気法のみで合わせ加工を行うことが可能であり、且つ、優れた透明性、接着性、耐貫通性、耐候性などの合わせガラスとして必要な諸物性を発現しえる合わせガラスを得ることができる。